

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 公表特許公報 (A)

(11) 特許出願公表番号

特表平8-507402

(43) 公表日 平成8年(1996)8月6日

(51) Int.Cl.<sup>6</sup>

識別記号 庁内整理番号

F I

H 01M 8/02

R 9444-4K

審査請求 未請求 予備審査請求 有 (全 41 頁)

(21) 出願番号 特願平6-509923  
(86) (22) 出願日 平成4年(1992)10月20日  
(85) 翻訳文提出日 平成7年(1995)4月20日  
(86) 国際出願番号 PCT/US92/07755  
(87) 国際公開番号 WO94/09519  
(87) 国際公開日 平成6年(1994)4月28日  
(81) 指定国 EP(AT, BE, CH, DE, DK, ES, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), AU, CA, JP, KR

(71) 出願人 バラード パワー システムズ インコーポレイティド  
カナダ国, ブリティッシュ コロンビア  
ブイ7ビー 3エヌ4, ノース バンクーバー, ユニット 107, ウエスト ファースト ストリート 980  
(71) 出願人 ウィルキンソン, デビッド ビー  
カナダ国, ブリティッシュ コロンビア  
ブイ7ケー 1ダブリュ4, ノース バンクーバー, コールマン ストリート 1391  
(74) 代理人 弁理士 石田 敏 (外3名)

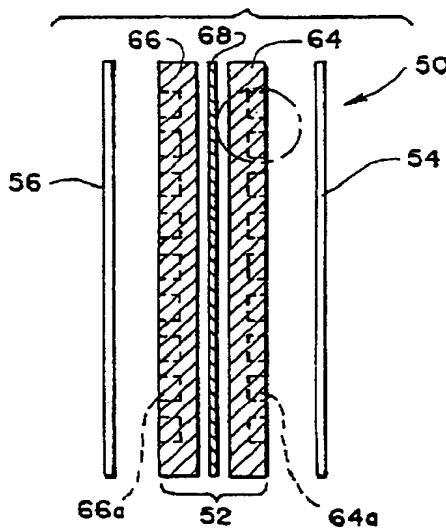
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 一体式の反応体流路を有する軽量な燃料電池膜電極アセンブリー

(57) 【要約】

燃料の反応性流体と酸化剤の反応性流体を反応生成物の流体と電気エネルギーに転化する電気化学的燃料電池が提供される。この燃料電池は、2つのセパレーター層(54, 56)の間に挿入された膜電極アセンブリー(52)を含む。セパレーター層は、燃料と酸化剤の反応性流体に実質的に不透過性の薄い導電性シート材料から作成される。膜電極アセンブリーは、多孔質導電性シート材料で作成された第1と第2の電極層(64, 66)を含む。電極層は付帯の触媒を有し、イオン交換膜が第1と第2の電極層の間に挿入される。電極層は、電極層の中の入口と出口の間に反応性流体を流すための、電極材料の中の隙間又は電極材料の表面に形成した溝(64a, 66a)のような流路を有する。

Fig. 3



**【特許請求の範囲】**

1. 燃料の反応性流体と酸化剤の反応性流体を反応生成物の流体と電気エネルギーに転化し、次の構成部材を含んでなる電気化学的燃料電池：

・第1と第2のセパレーター層であり、導電性シート材料で作成され、前記シート材料は前記燃料と酸化剤の反応性流体に対して不透過性であるセパレーター層、

・前記第1と第2のセパレーター層の間に挿入された膜電極アセンブリーであり、第1と第2の電極層を含み、前記電極層は多孔質導電性シート材料で作成されて付帯の触媒層を含み、及び前記第1と第2の電極層の間に挿入されたイオン交換膜を含む膜電極アセンブリー、

・前記第1の電極層は、燃料流体の入口、燃料流体の出口、及び前記燃料流体の入口と前記燃料流体の出口の間の前記第1電極層の中に前記燃料流体を流すための手段を含み、

・前記第2の電極層は、酸化剤流体の入口、酸化剤流体の出口、及び前記酸化剤流体の入口と前記酸化剤流体の出口の間の前記第2電極層の中に前記酸化剤流体を流すための手段を含む。

2. 前記流体を流すための手段が、前記第1と第2の電極層の少なくとも一方の中の隙間を含む請求の範囲第1項に記載の燃料電池。

3. 前記電極層の少なくとも一方が、前記少なくとも一方の電極層中の反応性流体の流れを分配するためのダム部材をさらに含む請求の範囲第2項に記載の燃料電池。

4. 前記電極層の少なくとも一方が、入口と出口の間の距離の少なくとも一部にそった前記少なくとも一方の電極層の中に、反応性

流体が流れる細管をさらに含む請求の範囲第2項に記載の燃料電池。

5. 前記電極層の少なくとも一方は、前記膜の反対に向いたその表面に形成した少なくとも1本の溝を有し、前記電極層を向いた隣のセパレーター層の表面は実質的に平坦であり、それによって、前記電極層の表面と前記隣のセパレーター層の表面は協同して前記電極の中に反応性流体が流れる流路を画定した請求の範

囲第1項に記載の燃料電池。

6. 前記少なくとも1本の溝が、前記燃料の入口と前記燃料の出口を内部接続した請求の範囲第5項に記載の燃料電池。

7. 前記少なくとも1本の溝が、前記燃料の入口から延長した第1の溝と前記燃料の出口から延長した第2の溝を含み、前記第2の溝は前記第1の溝と不連続であり、それによって、前記燃料の反応性流体は、前記第1の電極層の隙間を通って前記第1の溝から前記第2の溝に流れる請求の範囲第5項に記載の燃料電池。

8. 前記第1の溝と前記第2の溝は枝分かれしており、前記第1の溝の枝が前記第2の溝の枝とかみ合っている請求の範囲第7項に記載の燃料電池。

9. 前記少なくとも1本の溝が前記酸化剤の入口と前記酸化剤の出口を内部接続した請求の範囲第5項に記載の燃料電池。

10. 前記少なくとも1本の溝が、前記酸化剤の入口から延長した第1の溝と前記酸化剤の出口から延長した第2の溝を含み、前記第2の溝は前記第1の溝と不連続であり、それによって、前記燃料の反応性流体は、前記第2の電極層の隙間を通って前記第1の溝から前記第2の溝に流れる請求の範囲第5項に記載の燃料電池。

11. 前記第1の溝と前記第2の溝は枝分かれしており、前記第1の溝の枝が前記第2の溝の枝とかみ合っている請求の範囲第10

項に記載の燃料電池。

12. 前記膜電極アセンブリーの反対側に、前記セパレーター層の少なくとも1つに接触した冷却層をさらに含み、前記冷却層は導電性シート材料で作成され、前記冷却層は、冷却用流体を前記冷却層の中に流すための手段を有し、それによつて前記膜電極アセンブリーで発生した熱を冷却用流体に吸収させる請求の範囲第1項に記載の燃料電池。

13. 前記冷却用流体が空気である請求の範囲第12項に記載の燃料電池。

14. 前記冷却層は、前記膜電極アセンブリーに向いたその表面に形成した少なくとも1本の溝を有し、前記冷却層に面した隣のセパレーター層の表面は平坦

であり、それによって、前記冷却層の表面と前記隣のセパレーター層の表面は協同して前記冷却層の中に冷却用流体の流路を画定した請求の範囲第12項に記載の燃料電池。

15. 前記冷却用流体が水である請求の範囲第14項に記載の燃料電池。

16. 前記冷却用流体がエチレングリコールである請求の範囲第14項に記載の燃料電池。

17. 前記電極層の少なくとも一方は、前記膜電極アセンブリーの中に冷却用流体を流すための手段を有し、それによって、前記膜電極アセンブリーで発生した熱を前記冷却用流体に吸収させる請求の範囲第1項に記載の燃料電池。

18. 前記流すための手段が、前記冷却用流体を運ぶための細管を含む請求の範囲第17項に記載の燃料電池。

19. 前記冷却用流体が水である請求の範囲第17項に記載の燃料電池。

20. 前記冷却用流体がエチレングリコールである請求の範囲第

17項に記載の燃料電池。

21. 前記セパレーターブレートが、それから延長した熱交換面を含み、さらに前記熱交換面に冷却用流体を流すための手段を含み、それによって、前記膜電極アセンブリーで発生した熱を前記冷却用流体に吸収させる請求の範囲第1項に記載の燃料電池。

22. 前記冷却用流体が空気であり、前記冷却用流体を流すための手段がファンである請求の範囲第21項に記載の燃料電池。

23. 前記電極層が炭素繊維ペーパーで作成された請求の範囲第1項に記載の燃料電池。

24. 前記セパレーター層がグラファイト組成で形成された請求の範囲第1項に記載の燃料電池。

25. 前記セパレーター層がグラファイトホイルで作成された請求の範囲第24項に記載の燃料電池。

26. 前記セパレーター層がニオブ組成で形成された請求の範囲第1項に記載の燃料電池。

27. 前記セパレーター層がチタン組成で形成された請求の範囲第1項に記載の燃料電池。

28. 前記燃料が水素であり、前記酸化剤が酸素である請求の範囲第1項に記載の燃料電池。

29. 前記触媒が白金を含む請求の範囲第1項に記載の燃料電池。

30. 前記触媒が白金を含む化合物である請求の範囲第1項に記載の燃料電池。

。

31. 前記少なくとも1本の溝の側壁がシーラントでコーティングされ、前記シーラントは前記少なくとも1本の溝を流れる反応体に実質的に不透過性であり、それによって、前記反応体の流れが前記触媒の方に導かれる請求の範囲第5項に記載の燃料電池。

### 【発明の詳細な説明】

#### 一体式の反応体流路を有する軽量な燃料電池膜電極アセンブリー

#### 発明の技術分野

本発明は、固体ポリマーのイオン交換膜を使用する電気化学的燃料電池に関する。より詳しくは、本発明は、反応体の流路が電極材料に一体式である電気化学的燃料電池の膜電極アセンブリーに関する。本発明は、適切な出力特性を有し、軽量で体積の小さい燃料電池の構造を可能にする。

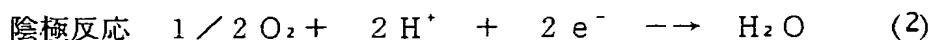
#### 発明の背景

電気化学的燃料電池は、燃料電池の中での燃料の酸化により、燃料から直接電気エネルギーに化学的エネルギーを転化させることによって電気エネルギーを発生する。典型的な燃料電池は、陽極、陰極、電解質を含む。燃料と酸化剤は陽極と陰極にそれぞれ供給される。陽極において、燃料は電極材料に浸透し、触媒層において反応してカチオンを生成し、カチオンは電解質を通って陰極まで移動する。陰極において、酸素含有ガス供給は触媒層にて反応し、アニオンを生成する。陰極で生成したアニオンはカチオンと反応し、反応生成物を生成する。燃料電池は有用な電流を発生し、反応生成物は燃料電池から排出される。

燃料として水素を、酸化剤として酸素（又は実質的に純粋な酸素）を使用する電気化学的燃料電池において、陽極における触媒された反応は、燃料の供給から水素カチオンを生成する。イオン交換膜は、水素イオン（プロトン）の陽極から陰極までの移動を容易にする。水素カチオンの伝導に加え、イオン交換膜は、一般

に酸素含有空気である酸化剤の流れから水素燃料の流れを隔てる。陰極において、酸素は触媒層において反応し、アニオンを生成する。陰極で生成したアニオンは、膜を横切った水素イオンと反応し、反応生成物として液体水を生成する。

このような燃料電池の中での陽極と陰極の反応は、次の式(1)と(2)の如くである。



固体ポリマー燃料電池は、一般に、多孔質の導電性シート材料で形成された2つの電極の間に配置した固体ポリマー電解質又はイオン交換膜からなる膜電極アセンブリーを含む。電極は典型的に炭素繊維ペーパーで形成され、通常はポリテトラフルオロエチレンのような疎水性ポリマーを含浸又は被覆する。膜電極アセンブリーは、所望の電気化学的反応を起こさせるように各々の膜／電極の界面に触媒層を含む。微細に分割された白金触媒が典型的に使用される。

通常の燃料電池においては、膜電極アセンブリーに向いた表面に、少なくとも1つの流路、又は彫り加工した又はフライス加工した又は注型した溝を有する各々の2つの硬質の導電性セパレータープレートの間に膜電極アセンブリーが配置される。これらのセパレータープレートは、場合により流路プレート (flow field plate) と称されることがあり、典型的にグラファイトで作成される。セパレータープレートの流路は、燃料と酸化剤をそれぞれの電極、即ち燃料側の陽極と酸化剤側の陰極に導く。セパレータープレートは電気的に直列に接続され、電極間に電子を伝導する経路を提供する。

従来の单一セルの配置において、セパレータープレートは各々の燃料電池の陽極側と陰極側の両方に配置される。セパレータープレートはそれぞれの電極と密接し、陽極で生じた電子を電気化学的反

応を完結させるために陰極に運ぶ導電路を提供する。このように、セパレータープレートは次のようにいくつかの役割を果たす：(1) 集電装置として作用する、(2) 電極の機械的支持を提供する、(3) それぞれの陽極と陰極の表面に燃料と酸化剤が接近するチャンネルを提供する、(4) 燃料電池の運転の間に発生した水の除去のためのチャンネルを提供する。

2以上の独立した燃料電池を直列又は並列に接続し、アセンブリーの全体の出力を増加することができる。そのような配列において、燃料電池は一般に直列に接続し、所与のセパレータープレートの1つの側は1つの燃料電池の陽極に接続し、セパレータープレートの他の側は隣接した燃料電池の陰極に接続する。このようなシリーズで接続した多数の燃料電池の配列は燃料電池スタックと称され、通常は引棒とエンドプレートによって一緒に支持される。スタックは典型的に、

燃料（実質的な純粋水素、メタノールリホーメート、又は天然ガスリホーメート）を、各々の燃料電池の陽極側のセパレータープレートの流路に導き、酸化剤（実質的な純粋酸素又は酸素含有空気）を各々の燃料電池の陰極側のセパレータープレートの流路に導くための供給マニホールド又は入口を含む。また、スタックは、一般に水である冷却流体をスタックの中の内側チャンネルに導き、燃料電池の中の水素と酸素の発熱反応によって発生した熱を吸収するための供給マニホールド又は入口を含む。また、スタックは一般に、連行水を同伴する未反応燃料を排出するための排出マニホールド又は出口、及び冷却水がスタックを出ていくための出口マニホールドを含む。

パーフルオロスルホンイオン交換膜（例、デュポン社が商標ナフィオン（Nafion）として販売）が、電気化学的燃料電池の使用に有用であることが見いだされている。ナフィオン膜は、イオン輸送が生

じるために水分子で水和される必要がある。このような水和は、流れを燃料電池に導入する前に燃料と酸化剤の流れを給湿することにより典型的に生じる。

ダウ社が商品名XUS 13204.10として販売の新しいタイプの実験室的パーフルオロスルホンイオン交換膜が、電気化学的燃料電池への使用に有用であることが見いだされている。ナフィオン膜と同様に、ダウ社の実験室的膜も、水素イオン輸送を行うために若干の水和が必要なように思われる。

燃料として水素、酸化剤として酸素を使用する燃料電池において、燃料は、実質的に純粋な水素の形態で、又は例えばメタノールと水の改質や天然ガスの改質の生成物のような水素含有リホーメートの形態で供給することができる。同様に、酸化剤は、実質的に純粋な酸素又は酸素含有空気の形態で供給することができる。燃料電池は典型的に一定圧力の燃料と酸化剤が流入する。圧力は一般に燃料と酸化剤の反応体の流れの供給源で圧力調節器によって制御される。電極をブリッジする回路に電気負荷が配置されると、負荷によって抜き取られる電流に比例して燃料と酸化剤が消費される。

前記のように、燃料電池スタックは、一般に水である冷却流体をスタックの中の内部チャンネルに導くための供給マニホールド又は入口を通常含み、燃料電池

の中で水素と酸素発熱反応によって発生した熱を吸収する。従来の設計において、内部冷却チャンネルは、2つのセパレータープレートの表面を利用し、一方はその表面を彫り加工した又はフライス加工した又は注型した溝を含み、他方は平面である組み合わせの表面によって形成される。冷却チャンネルはスタッツにそって周期的な間隔で配置される。本発明において、その表面に冷媒の溝を形成するには薄過ぎる。このため、本発明の燃料電池スタッツは、その中に作成した溝を有する別な冷却ジャケット

ト又は層を使用し、隣接したセパレータープレートの平面と協同して冷却チャンネルを提供する。或いは、膜電極アセンブリーそのものを冷却チャンネル又は細管を備えて作成することができ、例えば、アセンブリーを通して冷媒を運ぶ電極シート材料の中を管が走り、それによって分離した冷却ジャケットの必要を無くす。また、冷却は、セパレータープレートから突起したフィンのような熱交換面の上を空気のような冷却流体を通過させることによって達成することができる。

燃料電池スタッツの「繰り返し単位」は、少なくとも1つの膜電極アセンブリー、セパレータープレート、膜電極アセンブリーに付帯した冷却ジャケット（複数でもよい）を含むスタッツの最小の繰り返し部分である。各々の膜電極アセンブリーに1つの冷却ジャケットが存在しないことがあるため（即ち、場合により1つの冷却ジャケットが多数の膜電極アセンブリーを冷却する）、繰り返し単位は1以上の膜電極アセンブリーを含むことがある。

一般にグラファイトで作成した2つの硬質のセパレータープレートの間に挿入された膜電極アセンブリーを含む従来の繰り返し単位は、いくつかの面で不利である。第1に、セパレータープレートは、彫り加工した、フライス加工した、又は注型した流路を収容するに充分厚くなければならない。セパレータープレートの厚さは燃料電池の重さと体積を大きくする。本発明における反応体の流路は電極そのものの中にあるため、セパレータープレートが流路を収容する必要がなく、セパレータープレートは通常のアセンブリーよりも薄い材料で作成することができる。本発明において、セパレータープレートは導電性材料の薄いシートで作成する。1つの態様において、電極が、隣接したセパレータープレートに向いた

面に彫り加工した、フライス加工した、又は注型した流路を有する。電極表面が

セパレータープレートの表面と協同し、反応体の流路を完成する。グラファイトホイル、又は例えばニオブ、タンタルのような適当な金属の薄い軽量の導電性シート材料をセパレータープレートとして使用することができる。本発明のセパレータープレートの重さと体積の減少は、より軽くてコンパクトな燃料電池スタックの作成を可能にし、従来の燃料電池より、高い燃料電池出力／重量の比、高い出力／体積の比を提供する。また、セパレータープレートが薄い材料で作成できるため、本発明のセパレータープレートは、従来のセパレータープレートよりも作成費用が安価である。

本発明の設計の付加的な利益は、反応体（燃料と酸化剤）の流れの触媒座への接近である。反応体は、電極に隣接したセパレータープレートの中のチャンネルではなく、電極材料そのものの中の通路を流れるため、反応体は、触媒層に達するために電極材料の厚さ全体を移行する必要がない。反応体が触媒層に達するまでに移動しなければならない距離の減少は、反応体の触媒層への接近を向上し、燃料電池の潜在的な性能を改良する。

従来の燃料電池設計に対する本発明のもう1つの長所は、硬質なセパレータープレートに彫り加工、フライス加工、又は注型するよりも、電極材料に流路を作成することが比較的容易なことである。電極は一般に、炭素繊維ペーパーのような多孔質導電性シート材料からなるが、一方硬質のセパレータープレートは一般にグラファイト又は適当な金属から作成される。本発明において、硬質なセパレータープレートを彫り加工、フライス加工、又は注型する必要がなく、多孔質導電性材料の薄い軽量シートで置き換えることができ、グラファイトや金属セパレータープレートのフライス加工よりも少ない時間と費用で加工することができる。

### 発明の要旨

前述の長所は、燃料反応体の流れと酸化剤反応体の流れを反応生成物の流れと電気エネルギーに転化する電気化学的燃料電池によって達成される。この燃料電

池は、第1と第2のセパレーター層を含む。セパレーター層は、燃料と酸化剤の反応体の流れを実質的に透過しない導電性シート材料で作成される。膜電極アセンブリーを、第1と第2のセパレーター層の間に挿入する。アセンブリーは、多孔質導電性シート材料で作成した第1と第2の電極層を含む。電極層は付帯の触媒を有し、イオン交換膜が第1と第2の電極層の間に挿入される。第1電極層は、燃料の流れの入口、燃料の流れの出口、及び燃料の流れの入口と燃料の流れの出口の間の第1電極層の中に燃料の流れを通す手段を含む。第2電極層は、酸化剤の流れの入口、酸化剤の流れの出口、及び酸化剤の流れの入口と酸化剤の流れの出口の間の第2電極層の中に酸化剤の流れを通す手段を含む。

もう1つの態様において、流動手段は、第1と第2の電極層の少なくとも1つの中に隙間を含む。電極層は、電極層の中の反応体の流れをそらせるダム部材をさらに含むことができる。また、電極層は、電極層の中の反応体の流れを入口と出口の間の距離の少なくとも一部にそって導く細管を含むことができる。このような細管は連続又は不連続でよく、電極の中と触媒層の方への反応体の流れを可能にする周期的な間隔で開口部を有する。

電気化学的燃料電池のもう1つの態様において、電極層は、膜の反対に向いている表面に形成した少なくとも1本の溝を有する。電極層に向いた隣接のセパレーター層の表面は実質的に平面である。電極層の溝入り表面と隣接のセパレーター層の平らな表面は、協同して電極層の中の反応体流れの流路を画定する。各々の電極において、溝は連続であることができ、反応体の入口と反応体の出口を内

部で接続する。また、溝は、反応体入口から伸びる第1の溝、反応体出口から伸びる第2の溝を含むことができ、第2の溝は第1の溝と不連続である。反応体流体は、第1の溝から、第1電極層の隙間 (interstitial space) を通って第2の溝に流れる。好ましい態様において、第1の溝と第2の溝は枝分かれしており、第1の溝の枝は第2の溝の枝とかみ合っている。溝の2つの側壁は反応体に実質的に不透過にするためにコーティングすることができ、隣接した溝又は枝の間に反応体の流れが短絡することを防ぐため、溝の底部を通って触媒層の方に反応体の流れが導かれるようにする。

本発明の電気化学的燃料電池は、好ましくは、膜電極アセンブリーの反対側のセパレーター層の少なくとも1つに隣接した冷却層をさらに含む。冷却は、好ましくは繰り返し単位の間の一連の電気接続を維持するため、導電性シート材料で作成する。冷却層は、冷媒流体を冷却層の中に流し、それによって膜電極アセンブリーによって発生した熱を冷媒によって吸収するための中空の通路のような手段を含む。好ましい冷却用流体は空気である。

また、冷却層は、冷却層に向いた隣接したセパレーター層の表面が実質的に平面である場合、膜電極アセンブリーに向いたその表面に形成した少なくとも1本の溝を備えて作成することができる。そのような構成において、冷却層の溝入り表面と隣のセパレーター層の平らな表面は協同し、冷却層の中の冷媒の流路を画定する。この構成における好ましい冷却用流体は水であるが、エチレングリコールや空気のような他の適当な冷却用流体も使用可能である。

また、膜電極アセンブリーの冷却は、膜電極アセンブリーによって発生した熱が冷却用流体に吸収されるようにして電極層の少なくとも1つの中に冷却用流体を流すための手段を組み込むことにより行うこともできる。好ましい流れ手段は、膜電極アセンブリーの中

に冷却用流体を収めるためのチューブ又は細管を含む。この構成における好ましい冷却用流体は水とエチレングリコールである。

或いは、膜電極アセンブリーの冷却は、膜電極アセンブリーの反対に向いたセパレーター層の表面からフィン又は熱交換面を延ばし、熱交換表面に冷却用流体を流すことによって行うこともできる。

膜電極アセンブリーによって発生した熱は、熱交換表面を通して導き、冷却用流体に吸収させる。好ましい冷却用流体は空気であり、熱交換表面に冷媒を流すための好ましい手段はファンである。

本発明の電極層は炭素纖維ペーパーで作成することが好ましい。

セパレーター層は、グラファイトホイルのようなグラファイト組成、又はニオブ組成やチタン組成のような適当な金属で作成することが好ましい。好ましい燃料は水素であり、好ましい酸化剤は酸素である。好ましい触媒は白金、又は白金含

有化合物である。

#### 図面の簡単な説明

図1は、電気化学的に活性な給湿区画を示す燃料電池スタックの側面図である。

○  
図2は、電極に向いた表面に形成した反応体流路用の溝を有する2つの硬質なセパレータープレートの間に挿入した通常（従来技術）の膜電極アセンブリーの分解組立て側面図である。

図3は、2つのセパレーター層の間に挿入した本発明の一体式の反応体流路を有する、軽量な燃料電池膜電極アセンブリーの分解組立て側面図である。

図3Aは、図3の電極の円で囲んだ部分の拡大断面図であり、被覆した側壁を備えた反応体流路の溝を有する。

図3Bは、図3の電極の円で囲んだ部分の拡大断面図であり、溝を通って伸びる細管を備えた反応体流路の溝を有する。

図4は、硬質セパレータープレートの間に挿入され、その1つが冷却液の通路を有する2つの膜電極アセンブリーを含む通常（従来技術）の燃料電池繰り返し単位の側面図である。

図5は、2つの薄い軽量のセパレーター層の間に挿入された本発明による一体式の反応体流路を有する2つの膜電極アセンブリー、片側冷却ジャケットを含む燃料電池の繰り返し単位の1つの態様の側面図である。

図6は、3つの薄い軽量のセパレーター層の間に挿入された本発明による一体式の反応体流路を有する2つの膜電極アセンブリー、両側冷却ジャケットを含む燃料電池の繰り返し単位のもう1つの態様の側面図である。

図7は、多孔質導電性シート材料で作成され、それぞれの燃料の入口と出口のマニホールドに関係した入口と出口を有する本発明の陽極の1つの態様の平面図である。

図7Aは、入口と出口の間に燃料の流れを分配するための、多孔質導電性シート材料の中にダム部材を有する図7の態様の陽極の平面図である。

図8は、図7の陽極に対応する陰極の1つの態様の平面図であり、多孔質導電

性シート材料で作成され、それぞれの酸化剤の入口と出口のマニホールドに関係した入口と出口を有する。

図 8 A は、入口と出口の間に燃料の流れを分配するための、多孔質導電性シート材料の中にダム部材を有する図 8 の態様の陰極の平面図である。

図 9 は、多孔質導電性シート材料で作成され、それぞれの入口と出口のマニホールドに関係した入口と出口から延長したヘッダー溝を有する本発明の陽極の 2 番目の態様の平面図である。

図 10 は、多孔質導電性シート材料で作成され、それぞれの入口

と出口のマニホールドに関係した入口と出口から延長したヘッダー溝を有する図 9 の陽極に対応する陰極の 2 番目の態様の平面図である。

図 11 は、多孔質導電性シート材料で作成され、それぞれの燃料の入口と出口のマニホールドに関係した入口と出口から延長した枝分かれの内部切り込みの溝を有する本発明の陽極の 3 番目の態様の平面図である。

図 12 は、多孔質導電性シート材料で作成され、それぞれの酸化剤の入口と出口のマニホールドに関係した入口と出口から延長した枝分かれの内部切り込みの溝を有する図 11 の陽極に対応した陰極の 3 番目の態様の平面図である。

図 13 は、多孔質導電性シート材料で作成され、それぞれの燃料の入口と出口のマニホールドに関係した入口と出口を相互に接続する 1 本の曲がりくねった溝を有する本発明の陽極の 4 番目の態様の平面図である。

図 14 は、多孔質導電性シート材料で作成され、それぞれの酸化剤の入口と出口のマニホールドに関係した入口と出口を相互に接続する 1 本の曲がりくねった溝を有する図 13 の陽極に対応する陰極の 4 番目の態様の平面図である。

図 15 は、(1) 図 9 と 10 に示す一体式の反応体流路を有する電極 (プロット A) 、(2) 図 11 と 12 に示す一体式の反応体流路を有する電極 (プロット B) 、(3) 図 13 と 14 に示すと同様な連続した流路チャンネルの 1 本の路を有する通常 (溝なし) の電極とグラファイトの流路プレート (プロット X) 、を使用したユニットセルにおける電流密度の関数としてのセル電圧の 3 つの分極プロットである。

図16は、(1)図7と8に示す一体式の反応体流路を有する電極(

プロットC)、(2)図9と10に示す一体式の反応体流路を有する電極(プロットE)、(3)図13と14に示す一体式の反応体流路を有する電極(プロットD)、(4)図13と14に示すと同様な連続したフローチャンネルの1本の路を有する通常(溝なし)の電極とグラファイトの流路プレート(プロットY)、を使用したユニットセルにおける電流密度の関数としてのセル電圧の4つの分極プロットである。

図17は、図13と14に示す一体式の反応体流路を有する電極、厚さ0.100インチのグラファイトで作成したセパレーター層を有し、(1)酸化剤流れとして酸素含有空気(プロットF)、(2)酸化剤流れとして実質的に純粋な酸素(プロットG)、を使用した電極を用いた燃料電池繰り返し単位の電流密度の関数としてのセル電圧の2つの分極プロットである。

#### 図面の詳細な説明

先ず図面の図1に関して、燃料電池のスタックアセンブリー10は電気化学的活性区画26と給湿区画28を含む。スタックアセンブリー10はモジュールプレートとフレームの設計であり、圧縮エンドプレート16と流体エンドプレート18を含む。圧縮エンドプレート16の中に配置した随意の空気圧ピストン17は、気密を良好にする均一な圧力をアセンブリーに与える。活性区画26の向かい合った端部に位置するブスプレート22と24は、それぞれ負と正の接触を提供し、アセンブリーによって発生した電流を負荷(図示せず)に抜き出す。引棒20はプレート16と18の間を渡り、固定ナット21でスタックアセンブリー10をその組立て状態に維持・固定する。

活性区画20は、ブスプレート22と24の他に、各々のユニット12を繰り返す複数の燃料電池繰り返し単位12を含む。各々の繰り返し單

位12は、一体式の反応体流路、及びセパレーター層と冷却ジャケットを有する少なくとも1つの膜電極アセンブリーを含み、これらは以降で詳しく説明する。繰り返し単位12は、セパレーター層と冷却ジャケットを形成する導電性シートの間

の接触によって直列に電気接続される。

給湿区画 28は複数の給湿アセンブリー 14を含み、各々のアセンブリー 14は、燃料又は酸化剤の反応体の流路プレート、水の流路プレート、反応体の流路プレートと水の流路プレートの間に挿入した水蒸気輸送膜を含む。給湿区画 28は、活性区画 26に供給される燃料と酸化剤の流れに水蒸気を与え、それによって活性区画の膜が乾燥することを防ぐ。

図 2 は、従来技術の燃料電池 30を示す。燃料電池 30は、硬質のセパレータープレート 34と 36の間に挿入した膜電極アセンブリー 32を含む。膜電極アセンブリー 32は、2つの電極、即ち陽極 44と陰極 46の間に挿入されたイオン交換膜 42からなる。従来の燃料電池において、陽極 44と陰極 46は多孔質導電性シート材料、好ましくは炭素繊維ペーパーで作成され、平らな表面を有する。電極 44と 46は、それらを電気化学的に活性にするため、膜 42との間のそれらの表面上に配置した触媒物質の薄い層を有する。

図 2 に示すように、セパレータープレート 34は、膜電極アセンブリー 32に向いたその表面上に彫り加工した、フライス加工した、又は注型した少なくとも1本の溝 34aを有する。同様に、セパレータープレート 36は、膜電極アセンブリー 32に向いたその表面上に彫り加工した、フライス加工した、又は注型した少なくとも1本の溝 36aを有する。電極 44と 46の協同する表面に接触して組み立てたとき、溝 34aと 36aは、それぞれ燃料と酸化剤の反応体の流路を画定する。溝 34aと 36aは、米国特許第4988583号に開示のように、燃料

電池 30に供給される燃料と酸化剤の入口と出口マニホールド（図示せず）に相互に接続するそれぞれ1本の連続した溝であることが好ましく、この特許は本願でも参考にして含まれる。また溝 34aと 36aは、それぞれの燃料又は酸化剤の入口と出口のマニホールドを相互に接続する複数の別な溝として彫り加工、フライス加工、又は注型することができる。

次に図 3 に関して、燃料電池 50は、一体式の反応体流路を有する膜電極アセンブリー 52を採用する。膜電極アセンブリー 52は、軽量のセパレーター層 54と 56の間に挿入されている。膜電極アセンブリー 52は、2つの電極、即ち陽極 64と陰極

66に間に挿入されたイオン交換膜68からなる。陽極64と陰極66は、多孔質の導電性シート材料、好ましくは炭素繊維ペーパーで作成する。電極64と66は、それらを電気化学的に活性にするために膜68との間の界面に配置した触媒材料の薄い層を有する。

図3に示すように、陽極64は、膜62の逆向きの表面に形成した少なくとも1本の所望による溝64aを有する。同様に、陰極66は、膜62の逆向きの表面に形成した少なくとも1本の所望による溝66aを有する。セパレーター層54と56の協同する表面に接触して組み立てたとき、溝64aと66aは、それぞれ燃料と酸化剤の反応体の流路を画定する。溝64aと66aは、1本の連続した溝として構成してよく、又は従来の燃料電池のセパレータープレートに形成した溝について前述したように、入口と出口のマニホールドを内部で接続する複数の別な溝でもよい。或いは、溝64aと66aを電極64と66から完全に省略することができ、燃料と酸化剤の流れの反応体流路及び反応生成物の除去に役立つ気孔又は隙間を電極64と66の内部に設けてもよい。

図3Aは、図3の電極64の円で囲んだ部分の拡大断面図であり、

反応体が流れる溝の2つの側壁を、溝64aを通る反応体が実質的に浸透しないシーラント層65でコーティングしている。シーラント層65の存在は、反応体の流れを溝64aの底壁63を通して触媒層（図3Aに示さず）の方に反応体の流れを導き、隣の溝との反応体の流れの短絡を防ぐ。

図3Bは、図3の電極64の円で囲んだ部分の拡大断面図であり、反応体を運ぶための細管67が溝64aの中を伸びる。細管67は長さにそって周期的な間隔で形成した開口部（図示せず）を含み、電気化学的反応が生じる触媒層（図示せず）の方に電極64の中に反応体が流れることを可能にする。細管67は連続的（即ち、入口から出口の間の溝の長さ全体に伸びる）又は不連続的（即ち、溝の一部のみにそって伸びる）でよく、電極を通る反応体の流れの効率に依存する。

図4は、2つの膜電極センブリー80、90からなる従来の燃料電池繰り返し単位70を示す。膜電極センブリー80は、図2の膜電極センブリー32の構造と実質的に同じであり、陽極84と陰極86の間に挿入されたイオン交換膜82を含む。同

様に、膜電極アセンブリー90は、図2の膜電極アセンブリー32の構造と実質的に同じであり、陽極94と陰極96の間に挿入されたイオン交換膜92を含む。陽極84と94、陰極86と96は多孔質導電性シート材料から作成する。従来の燃料電池繰り返し単位において、膜電極アセンブリー80は硬質のセパレータープレート102と104の間に挿入され、一方、膜電極アセンブリー90はセパレータープレート104と106の間に挿入される。セパレータープレート102は、図4に示すように、その元の表面に彫り加工した、フライス加工した、又は注型した溝102aと102bを有する。プレート104はその元の表面に彫り加工した、フライス加工した、又は注型した溝104aと104bを有する。プレート106は、その元

の1つの表面に彫り加工した、フライス加工した、又は注型した1組の溝を有し、他の元の表面106aはブランクである。

燃料電池70を図4のように組み立てると、膜電極アセンブリー80の表面は溝102aと協同し、陰極86の主面にそって酸化剤流体を運び、陰極86で生成した反応生成物の除去のための反応体流路を画定する。膜電極アセンブリー80の他の表面は溝104bと協同し、陽極84の主面にそって燃料流体を運ぶ反応体流路を画定する。同様に、膜電極アセンブリー90の表面は溝104aと協同し、陰極96の主面にそって酸化剤流体を運び、陰極96で生成した反応生成物の除去のための反応体流路を画定する。膜電極アセンブリー90の他の表面は溝106bと協同し、陽極94の主面にそって燃料流体を運ぶ反応体流路を画定する。プレート106のブランク表面106aは、隣の燃料電池繰り返し単位(図示せず)の溝102bと協同し、冷却流体を運ぶ流路を形成する。ここで、プレート102は冷却ジャケットと称されることもある。

図5は、2つの薄い軽量のセパレーター層142と144の間に挿入された本発明による一体式の反応体流路を有する2つの膜電極アセンブリー120と130、及び片側冷却ジャケット146を含む燃料電池の繰り返し単位110の第1の態様を示す。膜電極アセンブリー120は、図3の膜電極アセンブリー52の構造と実質的に同じであり、陽極124と陰極126の間に挿入されたイオン交換膜122を含む。同様に、膜電極アセンブリー130は、図3の膜電極アセンブリー52の構造と実質的に同じであり、陽極134と陰極136の間に挿入されたイオン交換膜132を含む。陽極124と134

、陰極126と136は多孔質導電性シート材料から作成される。繰り返し単位110において、膜電極アセンブリー120は、薄い軽量のセパレーター層142と、隣の繰り返し単位（図示せず）の冷却ジャケットのブランク表面の間に挿入されている。  
膜電極アセンブリー130は薄い軽量のセパレータ

ー層142と144の間に挿入されている。陰極124は、図5に示すように、膜122の反対に向いた主面にフライス加工した(milled)溝124aを有し、一方、陰極126は、膜122の反対に向いた主面にフライス加工した溝126aを有する。同様に、陽極134は、膜122の反対に向いた主面にフライス加工した溝134aを有し、陰極136は、膜132の反対に向いた主面にフライス加工した溝136aを有する。冷却ジャケット146は、図示するように1つの主面に彫り加工した、フライス加工した、又は注型した1組の溝を有し、他の主面146bはブランクである。

繰り返し単位110を図5のように組み立てたとき、薄い軽量のセパレーター層142は溝124aと協同し、燃料流体を陽極124の中に運ぶ反応体流路を画定する。その反対の面で、セパレーター層142は溝136aと協同し、酸化剤流体を陰極136の中に運び、陰極136で生成した反応生成物を除去するための反応体流路を画定する。薄い軽量のセパレーター層144の表面は溝134aと協同し、燃料流体を陽極134の中に運ぶための反応体流路を画定する。その反対の側で、セパレーター層144は溝146aと協同し、冷却流体を片側冷却ジャケット146の中に運ぶための流路を形成する。冷却ジャケット146の反対の面146bはブランク（溝なし）であり、隣の燃料電池繰り返し単位（図示せず）の陰極126の溝126aと協同し、酸化剤流体を陰極126の中に運ぶ反応体流路を画定する。

図6は、3つの薄い軽量のセパレーター層240、242、244の間に挿入された本発明による一体式の反応体流路を有する2つの膜電極アセンブリー220と230と、両面冷却ジャケットを含む燃料電池の繰り返し単位210の第2の態様を示す。膜電極アセンブリー220は図5の膜電極アセンブリー120と実質的に同じであり、その中に形成された一体式の溝224aを有する陽極224と、その中に形成され

た一体式の溝226aを有する陽極226の間に挿入されたイオン交換膜222を含む。同

様に、膜電極アセンブリー230は図5の膜電極アセンブリー130と実質的に同じであり、その中に形成された一体式の溝234aを有する陽極234と、その中に形成された一体式の溝236aを有する陽極236の間に挿入されたイオン交換膜232を含む。膜電極アセンブリー220はセパレーター層240と242の間に挿入され、一方、膜電極アセンブリー230はセパレーター層242と244の間に挿入されている。セパレーター層240は溝226aと協同し、陰極226の中に酸化剤流体を運ぶため、及び陰極226で生成した反応生成物を除去するための反応体流路を画定する。図6に示すように、セパレーター層242の1つの表面は溝224aと協同し、燃料流体を陽極224の中に運ぶための反応体流路を画定する。セパレーター層242の他の表面は溝236aと協同し、陰極236の中に酸化剤流体を運ぶため、及び陰極236で生成した反応生成物を除去するための反応体流路を画定する。セパレーター層244は溝234aと協同し、燃料流体を陽極234の中に運ぶための流路を画定する。その反対側において、セパレーター層244は溝246aと協同し、両側冷却ジャケット246の中に冷却流体を運ぶための流路を形成する。隣の繰り返し単位(図示せず)のセパレーター層240は冷却ジャケット246の溝246bと協同し、付加的な冷却流体を冷却ジャケット246の中に運ぶための流路を形成する。

図7は、燃料(水素)流体の一体式の反応体流路を有する陽極260の第1の態様を示す。陽極260は、その中に形成した複数の開口部を有する多孔質導電性シート材料262で作成される。その開口部は隣接した電極とセパレーター層の対応する開口部と整列し、水素、酸化剤(酸素含有空気)、冷却流体(水)を燃料電池スタックの中に運ぶマニホールドを形成する。陽極260の開口部は、ドライ(未給湿)水素入口マニホールド268、給湿水素入口マニホールド274、給湿水素出口マニホールド272、ドライ(未給湿)空気入口マニホールド274、給湿空気入口マニホールド276、給湿空気出口マニホールド278、水入口マニホールド280、水から給湿器へのマニホールド282、及び水出口マニホールド284を含む。図7に示すように、ローケーター又は位置合わせピンもまた陽極260に形成されている。

給湿水素の入口マニホールド270は、水素燃料流体をマニホールド270から陽極シート材料262の隙間の中に導くための入口ランナー264を有する。同様に、給湿水

素の出口マニホールド272は、燃料流体を陽極シート材料262の隙間の中から給湿水素の出口マニホールド272の中に導くための出口ランナー266を有する。水素燃料流体は、入口ランナー264と出口ランナー266の間の多孔質シート材料262の間隙の中を流れる。

図7Aは、多孔質導電性シート材料263の間に配置したダム部材265を有する図7の陽極を示す。ダム部材265は、燃料の流れを入口ランナー264と出口ランナー266の間に分配し、その結果、入口264と出口266を結ぶ線の付近の優勢な流れのチャンネルに限定されずに、燃料は均等に侵入してシート材料263の外側領域に達する。

図8は、図7の陽極260に対応する陰極290の態様を示す。陰極290は、上記の陽極260の開口部に対応する複数の開口部を有する多孔質導電性シート材料292で形成される。給湿空気の入口マニホールド276は、給湿した酸素含有空気流体をマニホールド276から陰極シート材料292の隙間の中に運ぶための入口ランナー294を有する。同様に、給湿空気の出口マニホールド278は、給湿した空気流体を陰極シート材料292の隙間の中から空気出口マニホールド278の中に運ぶための出口ランナー296を有する。給湿した酸素含有

空気の流体は、入口ランナー294と出口ランナー296の間の多孔質シート材料292の隙間の中を流れる。

図8Aは、多孔質導電性シート材料293の中に配置したダム部材295を備えた図8の陰極を示す。ダム部材295は、酸化剤の流れを入口ランナー294と出口ランナー296の間に分配し、その結果、入口294と出口296を結ぶ線の付近の優勢な流れのチャンネルに限定されずに、酸化剤は均等に侵入してシート材料293の外側領域に達する。

図9は、燃料（水素）流体の一体式の反応体流路を有する陽極310の第2の態様を示す。陽極260と同様に、陽極310は、図7の陽極260の前記の開口部に対応する複数の開口部を有する多孔質導電性シート材料312で作成される。給湿水素の入口マニホールド270は、水素燃料流体をマニホールド270から陽極シート材料312の隙間の中に導くための入口ランナー314と、入口ランナー314から伸びるヘ

ッダー溝318を有する。給湿水素の出口マニホールド272は、燃料流体を陽極シート材料312の隙間の中から給湿水素の出口マニホールド272の中に導くための出口ランナー316と、出口ランナー316から伸びるヘッダー溝320を有する。水素燃料流体は、多孔質シート材料262の隙間の中のヘッダー溝318と320の間を流れる。

図10は、図9の陽極310に対応する陰極330の1つの態様を示す。陰極330は、前記の陽極260の開口部に対応する複数の開口部を有する多孔質導電性シート材料で作成される。給湿空気の入口マニホールド276は、給湿した酸素含有空気流体をマニホールド276から陰極シート材料312の隙間の中に導くための入口ランナー334と、入口ランナー334から伸びるヘッダー溝338を有する。同様に、給湿空気の出口マニホールド278は、給湿した空気流体を陰極シ

ート材料332の隙間の中から空気出口マニホールド278の中に導くための出口ランナー336と、ヘッダー溝340を有する。給湿した酸素含有空気流体は、多孔質シート材料332の隙間中のヘッダー溝338と340の間を流れる。

図11は、燃料（水素）流体の一体式の反応体流路を有する陽極350の第3の態様を示す。陽極350は、図7の陽極260の前記の開口部に対応する複数の開口部を有する多孔質導電性シート材料352で作成される。給湿水素の入口マニホールド270は、水素燃料流体をマニホールド270から陽極シート材料352の隙間の中に導くための入口ランナー354、入口ランナー354から伸びるヘッダー溝358、及びヘッダー溝358から伸びて枝分かれした溝364を有する。給湿水素の出口マニホールド272は、燃料流体を陽極シート材料352の隙間の中から給湿水素の出口マニホールド272の中に導くための出口ランナー356、ヘッダー溝360、及びヘッダー溝360から伸びる枝分かれ溝362を有する。枝分かれ溝362は、図11に示すように枝分かれ溝364とかみ合っている。水素燃料流体は、多孔質シート材料352の隙間中の個々の枝分かれ溝362と364の間、及びヘッダー溝と隣の枝分かれ溝の間を流れる。

図12は、図11の陽極350に対応する陰極370の態様を示す。陰極370は、前記の陽極260の開口部に対応する複数の開口部を有する多孔質導電性シート材料で作成される。給湿空気の入口マニホールド276は、給湿した酸素含有空気流体

をマニホールド276から陰極シート材料372の隙間の中に導くための入口ランナー374、ヘッダー溝378、及びヘッダー溝378から伸びる枝分かれ溝384を有する。給湿空気の出口マニホールド278は、給湿した空気流体を陰極シート材料332の隙間の中から空気出口マニホールド278の中に導くための出口ランナー336、ヘッダー溝380、及びヘッダー溝38

0から伸びる枝分かれ溝382を有する。枝分かれ溝382は、図12に示すように枝分かれ溝384とかみ合っている。給湿した酸素含有空気流体は、多孔質シート材料372の隙間の中の個々の枝分かれ溝382と384の間、及びヘッダー溝と隣の枝分かれ溝の間を流れる。

図13は、燃料（水素）流体の一体式の反応体流路を有する陽極390の第4の態様を示す。陽極390は、図7の陽極260の前記の開口部に対応する複数の開口部を有する多孔質導電性シート材料392で作成される。給湿水素の入口マニホールド270は、図13に示すように、そこから伸びる入口ランナー394を有する。給湿水素の出口マニホールド272は、図示するように、そこから伸びる出口ランナー396を有する。1本の連続した曲がりくねった溝398が入口ランナー394と出口ランナー396を相互に接続し、水素燃料流体を入口ランナー394から出口ランナー396に導く。

図14は、図13の陽極390に対応する陰極410の態様を示す。陰極410は、前記の陽極260の開口部に対応する複数の開口部を有する多孔質導電性シート材料で作成される。給湿空気の入口マニホールド276は、図14に示すように、そこから伸びる入口ランナー414を有する。給湿水素の出口マニホールド278は、図示するように、そこから伸びる出口ランナー416を有する。1本の連続した曲がりくねった溝418が入口ランナー414と出口ランナー416を相互に接続し、酸素含有空気流体を入口ランナー414から出口ランナー416に導く。

図15は、異なる一体式の反応体流路構成を有する膜電極アセンブリーを使用した2種類のそれぞれの燃料電池の性能と、通常（溝なし）の電極及び図13と14に示したと同様な1本の連続した流路を有する膜電極アセンブリーを使用した燃料電池の性能とを比較する。図15の燃料電池はナフィオン117（厚さ0

007イン

チ) イオン交換膜を使用し、30/30 p s i g の空気/水素の圧力、70℃の温度、2.0/2.0 の空気/水素の化学量論で運転した。また、図15の燃料電池は厚さ0.20インチのグラファイトセパレーター層を使用した。電極は厚さ0.27インチの炭素繊維ペーパーから作成した。各々の燃料電池は、2つのグラファイト片側冷却ジャケットの間に挿入した。

図15のプロットAは、図9と10の構成の電極、即ち、陽極と陰極の両者が膜の反対に向いたそれらの表面に形成したガス入口とヘッダー溝を有する電極について、電流密度の関数としての電圧を示す。図15のプロットBは、図11と12の構成の電極、膜の反対に向いたそれらの表面に形成した枝分かれとかみ合った溝の電極について、電流密度（平方フィートあたりのアンペア）の関数としての電圧を示す。プロットAとBにおいて、電流密度が増加すると、燃料電池電圧は約1.0ボルトから約0.9ボルトに若干減少する。プロットAにおいて、電流密度が60アンペア/平方フィート以上に増えると、電圧は約0まで急激に減少する。プロットBのかみ合った溝の構成は、プロットAの構成よりも広い電流密度範囲で高い電圧レベルを維持し、電流密度が120アンペア/平方フィートを超えると、約0まで鋭い電圧の低下を示す。グラファイトプレートで作成した反応体の流れチャンネルを備えた従来の構成のプロットXは、プロットA又はプロットBの構成のいずれよりも広い電流密度範囲で高い電圧レベルを維持した。

図16は、異なる一体式の反応体流路構成を有する膜電極センブリーを使用した3種類のそれぞれの燃料電池の性能と、通常（溝なし）の電極及び図13と14に示したと同様なワンパスの連続した流路チャンネルを有する膜電極センブリーを使用した燃料電池の性能とを比較する。燃料電池はナフィオン117（厚さ0.00

7インチ）イオン交換膜を使用し、30/30 p s i g の空気/水素の圧力、72℃の温度、2.0/2.0 の空気/水素の化学量論で運転した。また、図16

の燃料電池は厚さ 0.20 インチのグラファイトセパレーター層を使用した。電極は厚さ 1.5 mm の炭素繊維ペーパーから作成した。各々の燃料電池は、2 つのグラファイト片側冷却ジャケットの間に挿入した。

図 16 のプロット C は、図 7 と 8 の電極、即ち、それぞれのマニホールドから電極材料の隙間に伸びるガスの入口と出口を有する陽極と陰極を備えた構成についての電流密度（アンペア／平方フィート）の関数としての電圧を示す。図 16 のプロット D は、図 13 と 14 の構成、即ち、入口と出口を内部接続する 1 本の連続の蛇行した溝を有する陽極と陰極の構成についての電流密度（アンペア／平方フィート）の関数としての電圧を示す。図 16 のプロット E は、図 9 と 10 の構成、即ち、陽極と陰極の両者が膜の反対に向いたそれらの表面に形成したガス入口とヘッダー溝を有する電極についての電流密度（アンペア／平方フィート）の関数としての電圧を示す。プロット C、D、E において、燃料電池電圧は、電流密度が約 300 アンペア／平方フィートまで増加するにつれて、約 1.0 ボルトから約 0.6 ボルトまでほぼ直線的に減少する。プロット C、D において、電流密度が 300 アンペア／平方フィート以上になると電圧が約 0.2 ボルトまで急激に低下する。プロット E において、電流密度が 400 アンペア／平方フィート以上になると電圧が約 0.2 ボルトまで急激に低下する。このように、プロット E のガス入口と構成は、ガス入口のみと 1 本の溝の構造のプロット C と D よりも広い電流密度範囲で高い電圧レベルを維持する。プロット C、D、E のそれぞれの構造は、従来のグラファイトプレートに形成した反応体の流路チャンネルを備えたプロット Y の構成よりも、広い電

流密度範囲にわたって高い電圧レベルを維持した。

図 17 は、一体式の反応体流路を有し、異なる酸化剤流体を使用した膜電極センブリーを用いた 2 種類の燃料電池の性能を示す。図 17 の燃料電池の各々の電極は、図 13 と 14 に示すように、膜の反対に向いたそれらの表面にフライス加工した連続の蛇行した溝を有した。燃料電池はナフィオン 117（厚さ 0.07 インチ）イオン交換膜を使用し、30/30 p s i g の酸化剤／水素の圧力、72 °C の温度、2.0/2.0 の空気／水素の化学量論で運転した。電極は厚

さ1. 5 mmの炭素纖維ペーパーから作成した。膜電極アセンブリーは、厚さ0.100インチのグラファイトで作成した素材板の平面（溝なし）セパレータープレートの間に挿入した。各々の燃料電池を、グラファイト製の2つの片側冷却ジャケットの間に挿入した。

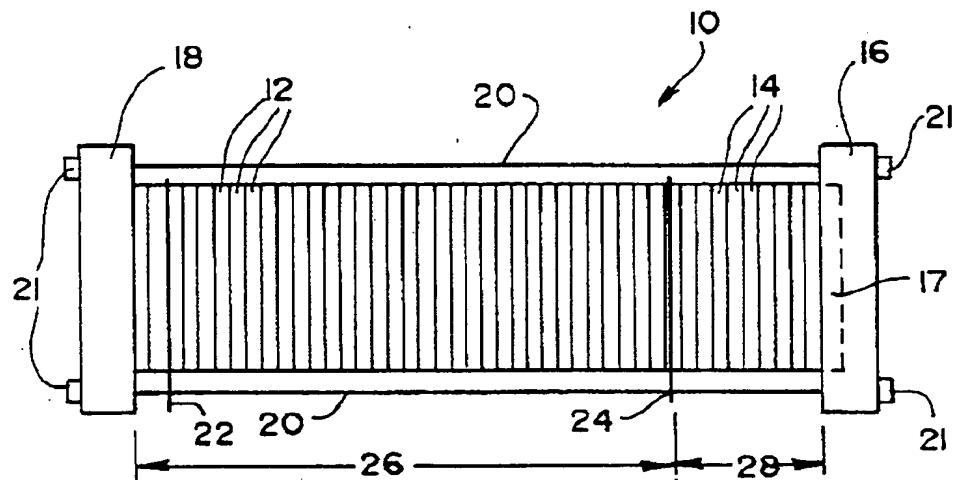
図17のプロットEは、酸化剤として酸素含有空気（約21%の酸素）を使用する構成についての電流密度（アンペア／平方フィート）の関数としての電圧を示す。図17のプロットGは、酸化剤として実質的に純粹な酸素を使用する構成についての電流密度の関数としての電圧を示す。酸化剤として実質的に純粹な酸素を使用する燃料電池、即ち、プロットGは、酸素含有空気を使用する燃料電池よりも広い電流密度範囲で高い電圧を示す。

まとめると、一体式の反応体流路を有する膜電極アセンブリーを使用する薄くて軽量の燃料電池が提供される。電極材料の中の反応体流路の位置は、薄くて軽量なガス不透過層に適し、厚いセパレータープレートの除去を可能にする。他の繰り返し単位との組み合わせにおいて、本発明は、セパレータープレートに彫り加工した、フライス加工した、又は注型した流路を有する従来の繰り返し単位よりも高い電力／体積と電力／重量の比を与える燃料電池スタック

を提供する。また、電極材料に存在する流路の位置は、反応体が触媒座に達するために移行しなければならない距離を減らし、それによって燃料電池の潜在的な性能を改良する。最後に、一体式の反応体流路を有する膜電極アセンブリーは、硬質なセパレータープレートにフライス加工した流路を有する従来の繰り返し単位よりも製造費用が安価である。

本発明の特定の部材と応用について説明してきたが、当然ながら本発明はそれらに限定されるものではなく、当業者は特にこれまでの技術に照合して改良を行うことができるためである。したがって、本願の請求の範囲は、そのような改良を含み、本発明の思想と範囲の中にある特徴を包含すると解釈すべきである。

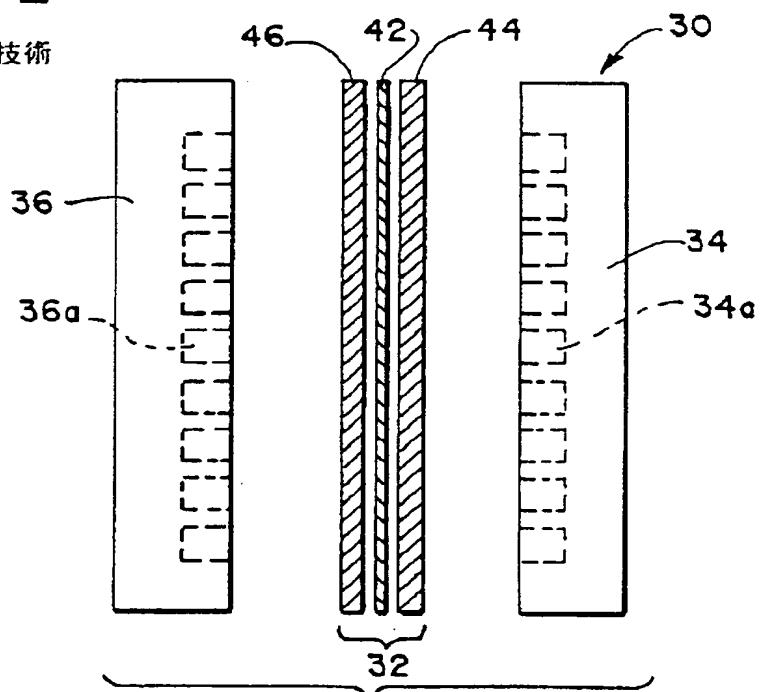
【図1】

**Fig. 1**

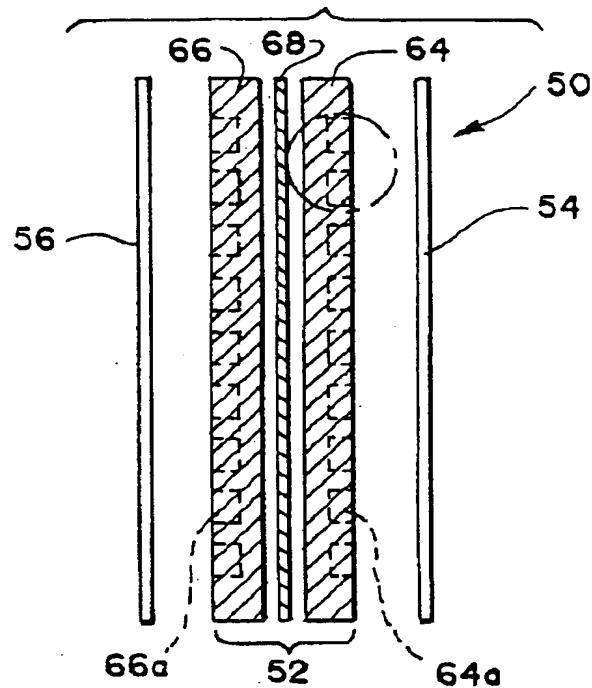
【図2】

**Fig. 2**

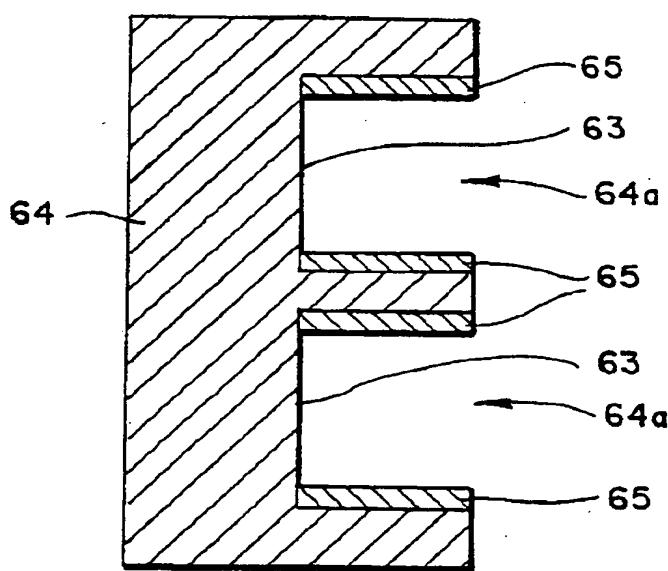
従来技術



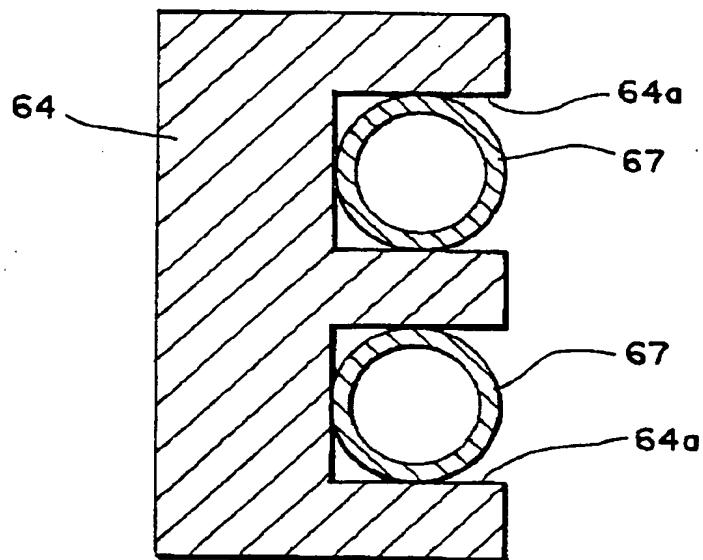
【図3】

**Fig. 3**

【図3A】

**Fig. 3A**

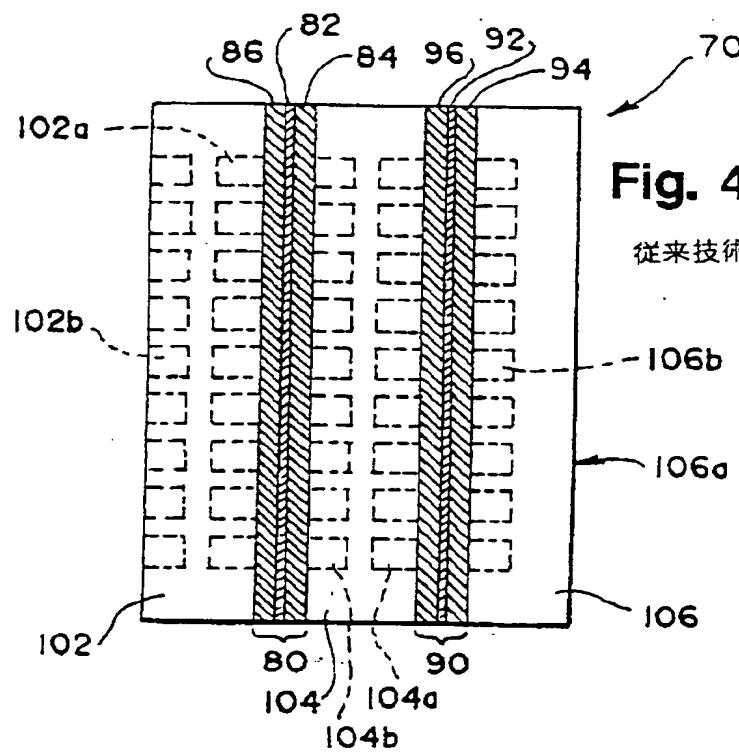
【図3B】

**Fig. 3B**

【図4】

**Fig. 4**

従来技術



【図5】

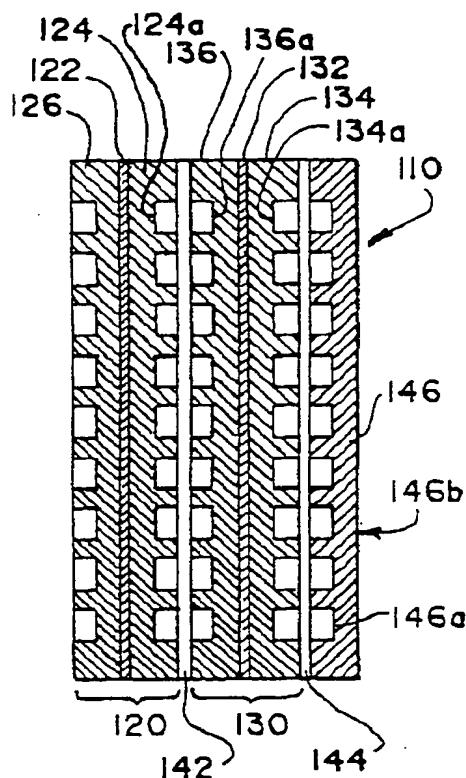
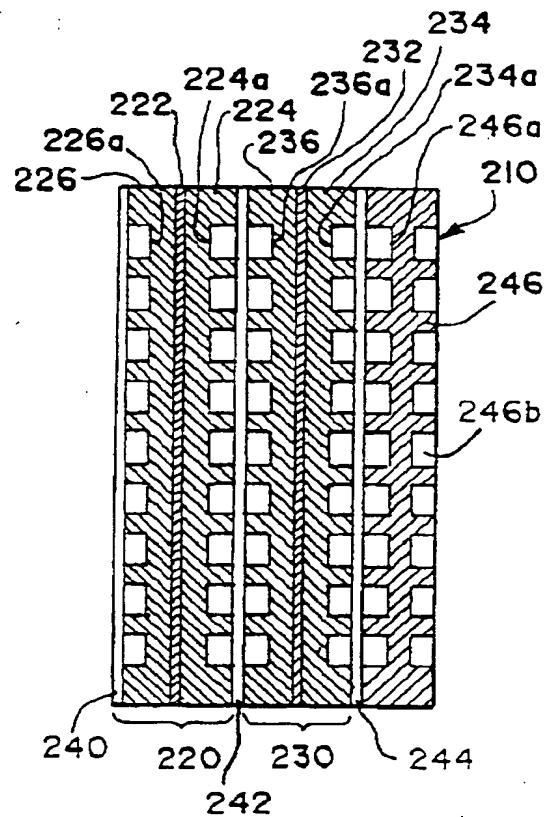
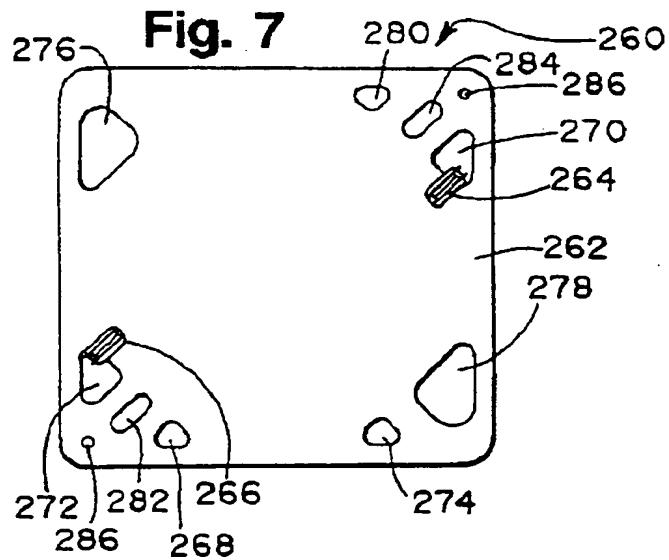


Fig. 5

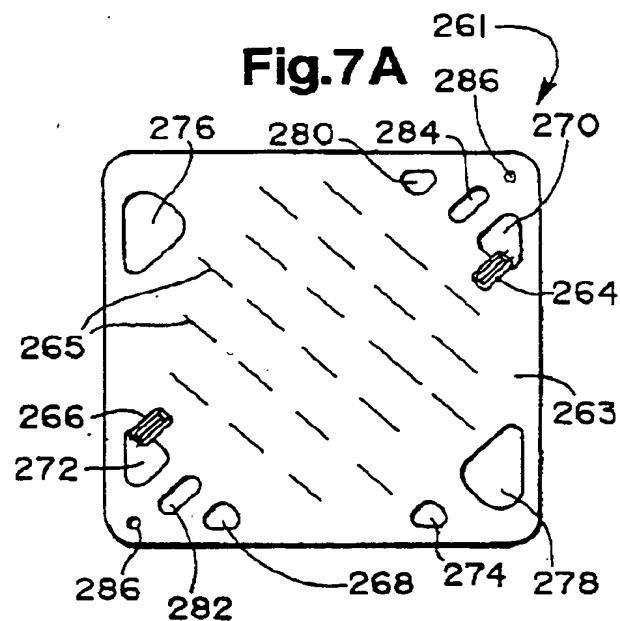
【図6】

**Fig. 6**

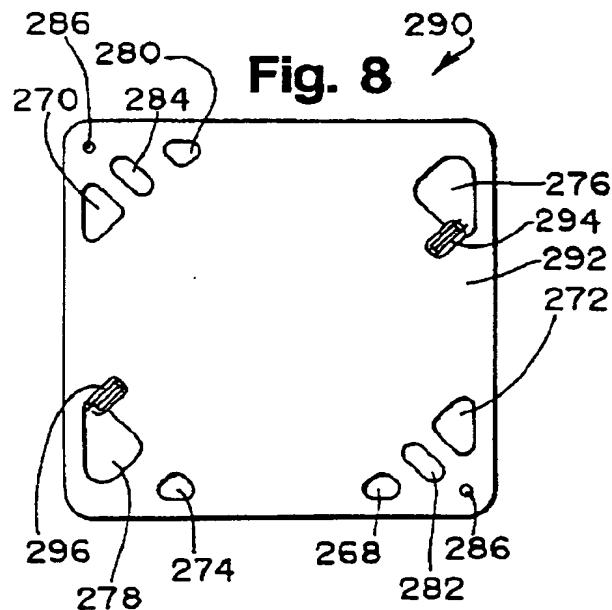
【図7】



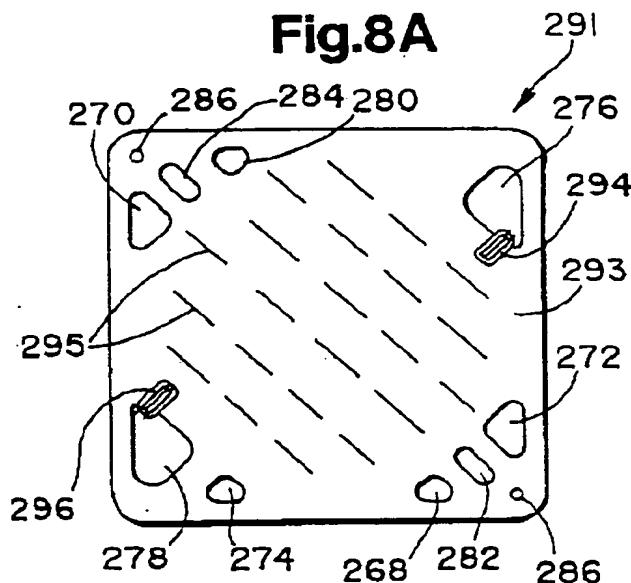
【図7A】



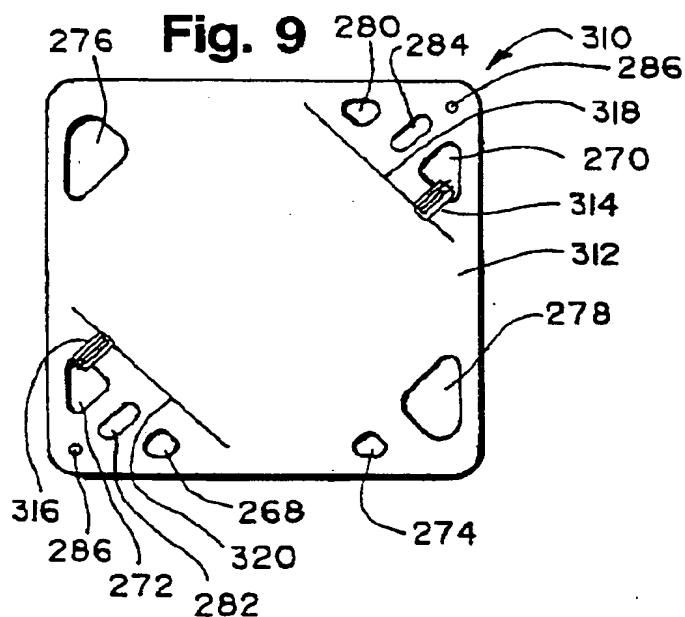
【図8】



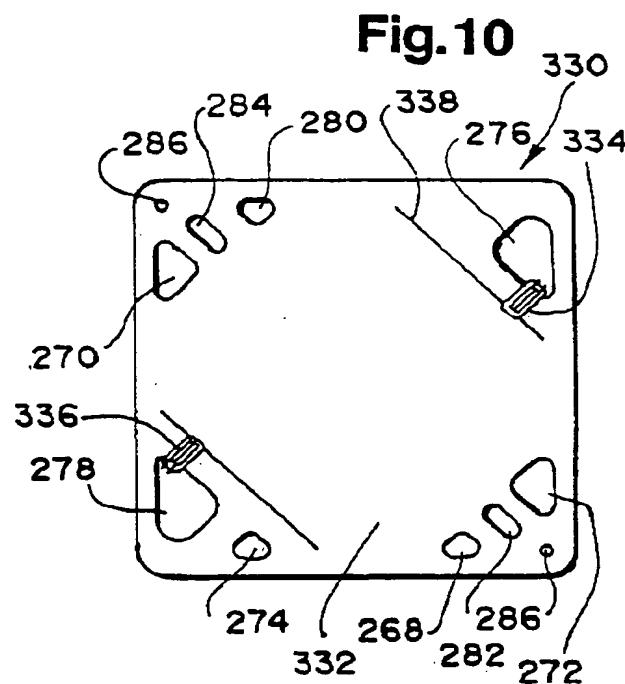
【図8A】



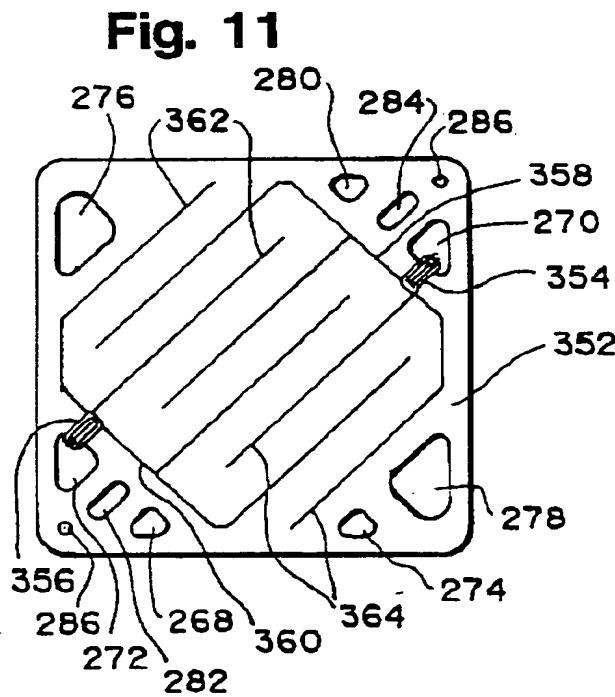
【図9】



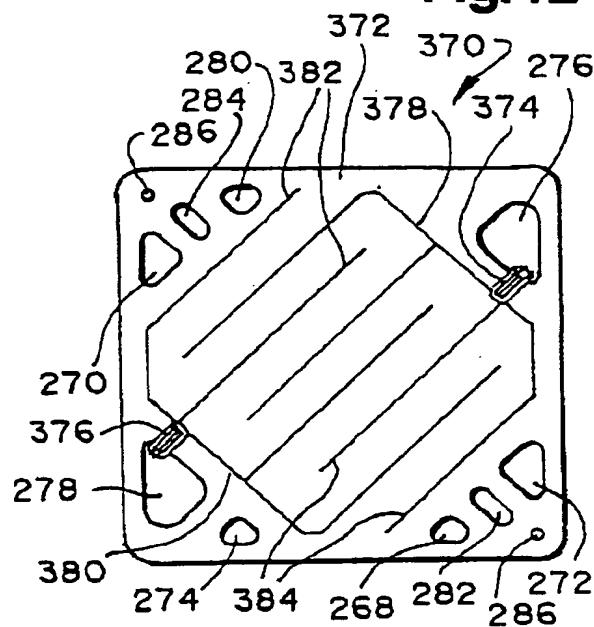
【図10】



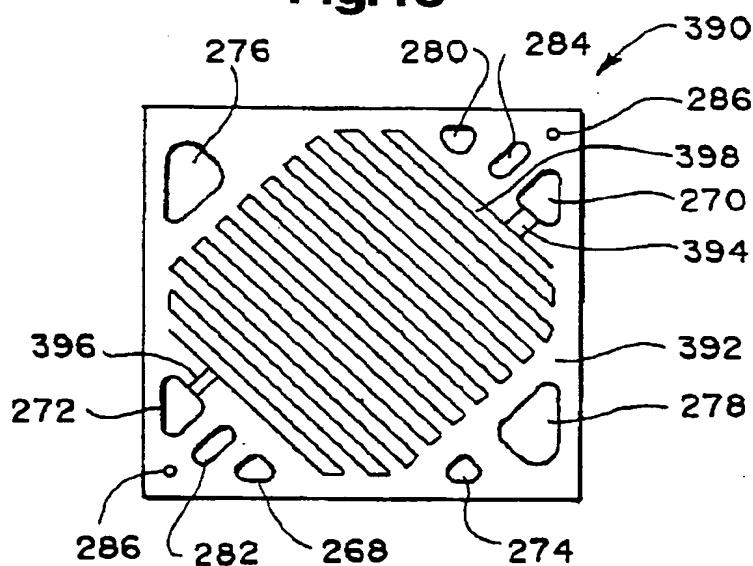
【図11】



【図12】

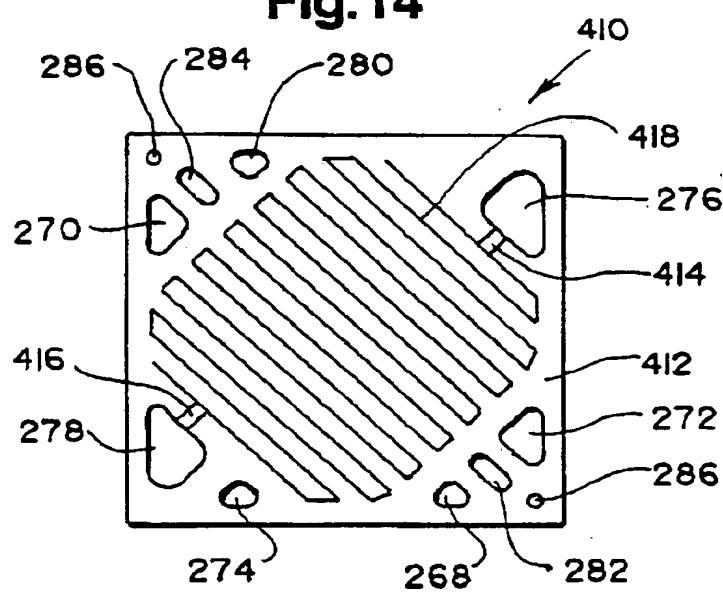
**Fig.12**

【図13】

**Fig.13**

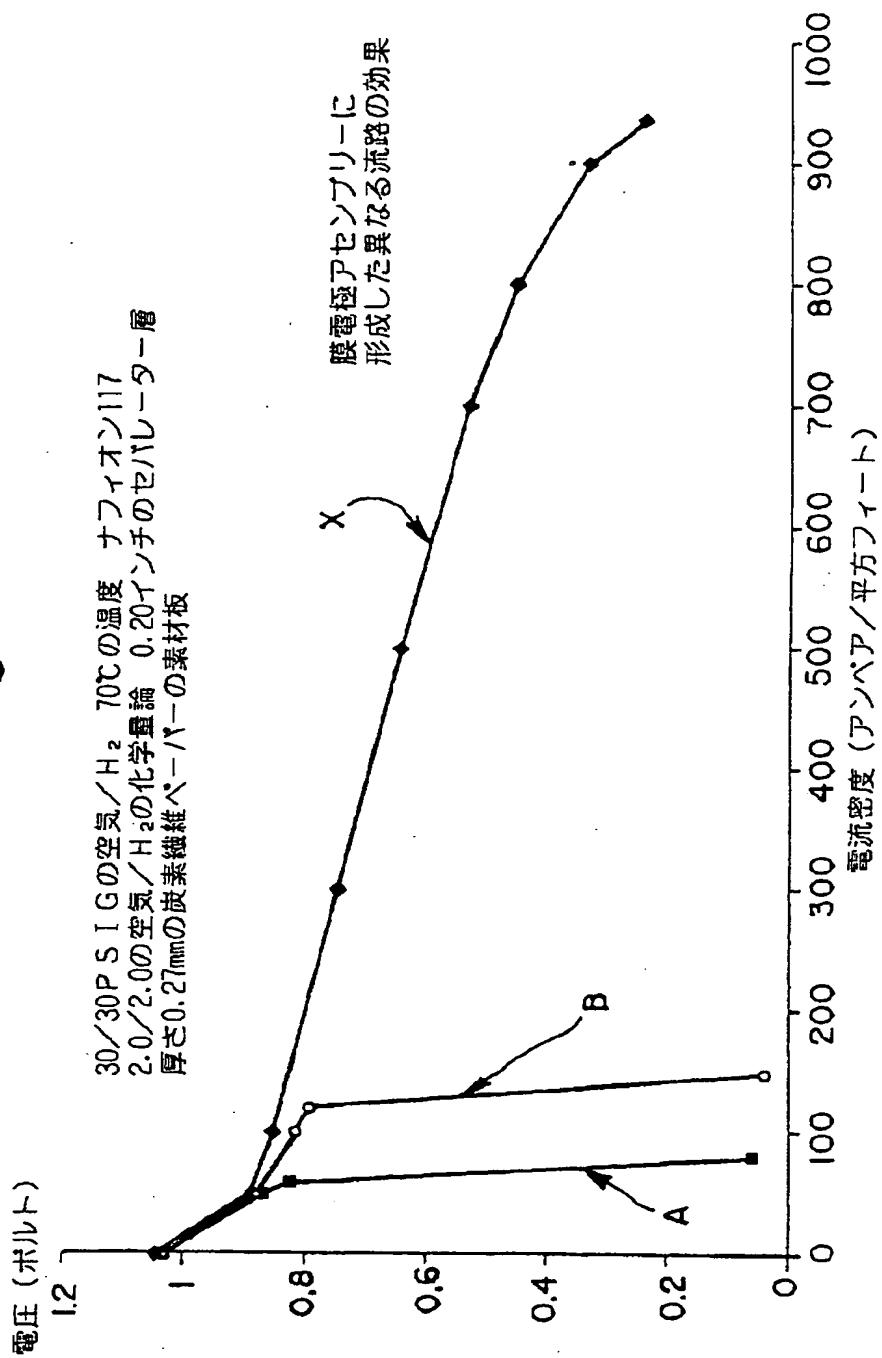
【図14】

Fig.14



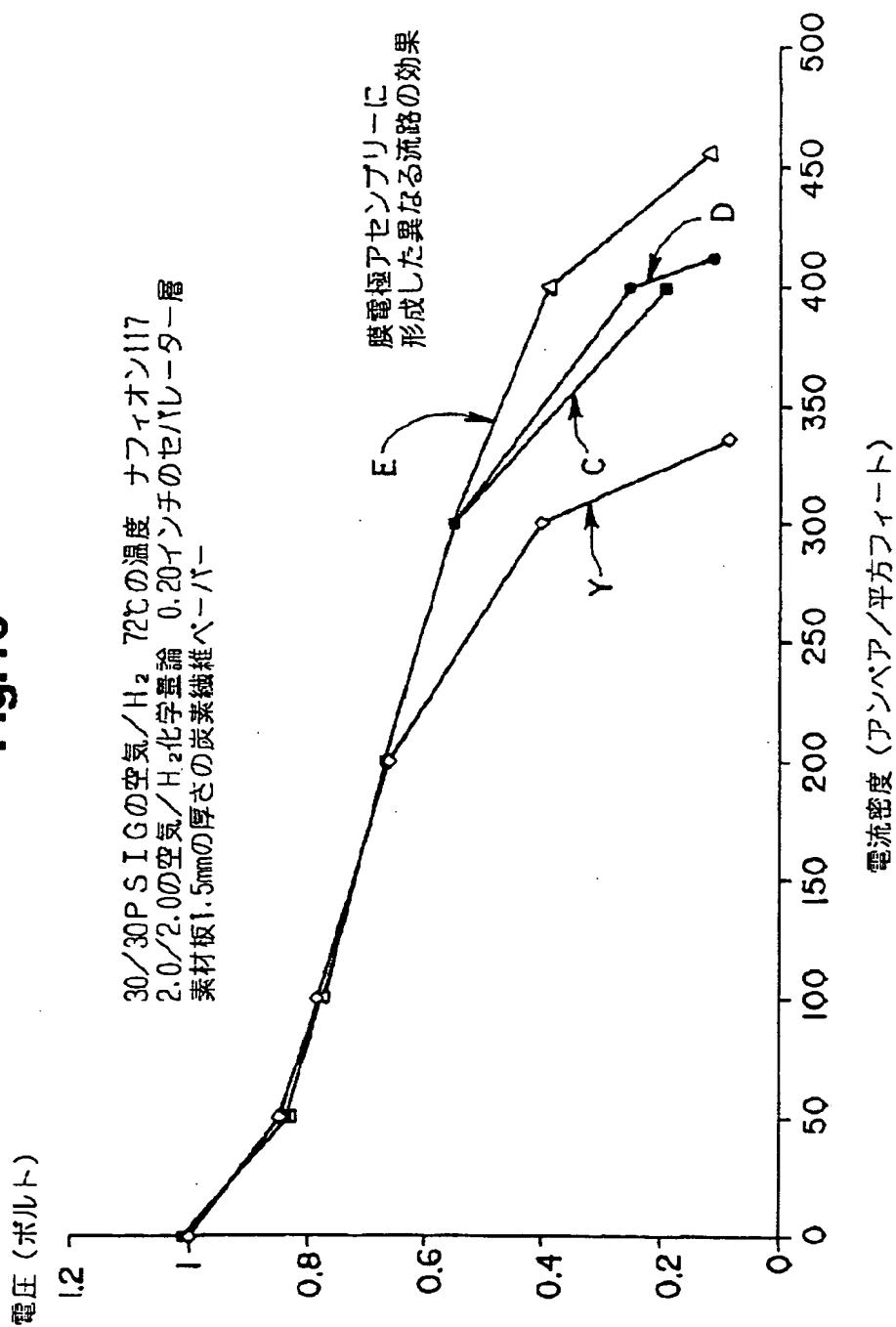
【図15】

Fig. 15



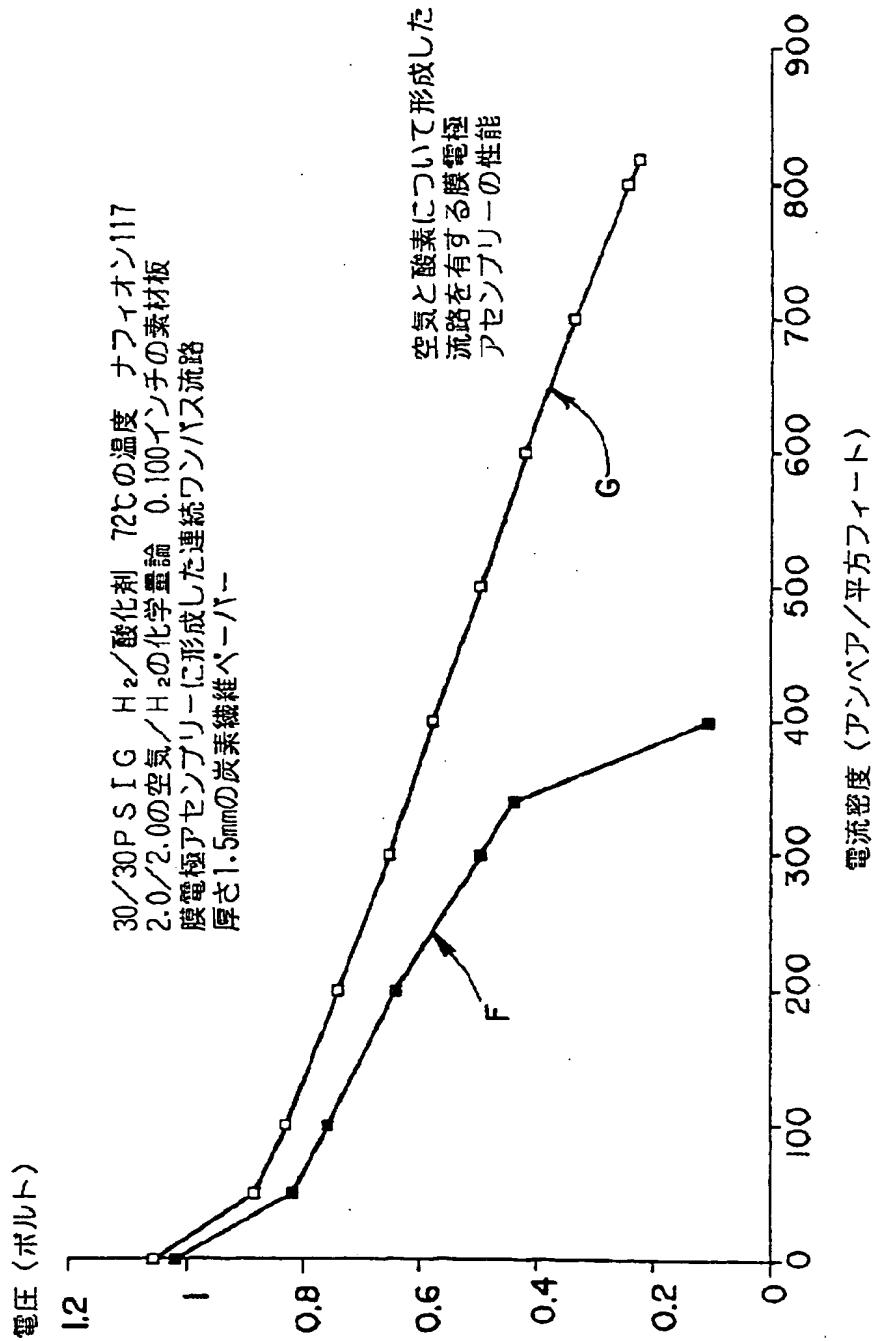
【図16】

Fig. 16



【図17】

Fig. 17



## 【国際調査報告】

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

PCT/US92/07755

<b>A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER</b>		
IPC(5) : H01M 2/00 US CL : 429/26,32,33,34 According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
<b>B. FIELDS SEARCHED</b>		
Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)  U.S. : 429/26,32,33,34		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched		
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)		
<b>C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT</b>		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	US,A, 4,977,041 (Schiowaza et al.) 11 December 1990.	1-31
Y	US,A, 4,929,517 (Luoma et al.) 29 May 1990.	1-31
Y	US,A, 4,826,741 (Aldhart et al.) 02 May 1989 See drawings.	1-31
A	US,A, 4,345,008 (Breault) 17 August 1982.	1-31
A	EP,A, 0080129 (Vum et al.) 01 June 1983.	1-31
Y	JP,A 0093268 (Seisakusho et al.) 28 July 1981 See Abstract.	1-31
<input type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input type="checkbox"/> See patent family annex.		
* Special categories of cited documents: 'A' document dealing with the general state of the art which is not considered to be part of particular relevance 'E' earlier document published on or after the international filing date 'L' document which may throw doubt on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) 'O' document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other event 'P' document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed		"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art "A" document member of the same patent family
Date of the actual completion of the international search  30 DECEMBER 1992		Date of mailing of the international search report  15 JAN 1993
Name and mailing address of the ISA/ Commissioner of Patents and Trademarks Box PCT Washington, D.C. 20231 Facsimile No. NOT APPLICABLE		Authorized officer  M. M. NUZZOLILLO TELEPHONE NO. (703) 308-2345

---

フロントページの続き

- (71)出願人 ボス、ヘンリー エイチ  
カナダ国、ブリティッシュ コロンビア  
ブイ7エヌ 2ジェイ5, ノース バンク  
ーバー, ウエスト トゥエンティエイス  
ストリート 524
- (71)出願人 ブラター, キース  
カナダ国、ブリティッシュ コロンビア  
ブイ6エヌ 1エヌ2, バンクーバー, ブ  
レスコット ストリート 7049
- (72)発明者 ウィルキンソン, デビッド ビー.  
カナダ国、ブリティッシュ コロンビア  
ブイ7ケー 1ダブリュ4, ノース バン  
クーバー, コールマン ストリート 1391
- (72)発明者 ボス、ヘンリー エイチ.  
カナダ国、ブリティッシュ コロンビア  
ブイ7エヌ 2ジェイ5, ノース バンク  
ーバー, ウエスト トゥエンティエイス  
ストリート 524
- (72)発明者 ブラター, キース  
カナダ国、ブリティッシュ コロンビア  
ブイ6エヌ 1エヌ2, バンクーバー, ブ  
レスコット ストリート 7049

【公報種別】特許法第17条第1項及び特許法第17条の2の規定による補正の掲載

【部門区分】第7部門第1区分

【発行日】平成10年(1998)9月8日

【公表番号】特表平8-507402

【公表日】平成8年(1996)8月6日

【年通号数】

【出願番号】特願平6-509923

【国際特許分類第6版】

H01M 8/02

【F I】

H01M 8/02 R

## 子 妃 領 正 書

平成10年9月3日

特許庁長官 佐 井 寿 光 殿

## 1. 事件の表示

平成6年特許第509923号

## 2. 補正をうる者

事件との関係 佐井山剛入

名前 バラード・パワー・システムズ インコーポレイティド(外3名)



## 3. 代理人

住所 〒105-8123 東京都港区北ノ町5丁目5号 北ノ門37号ビル

電話番号 03-5470-1360

氏名 弁理士 (7751) 石出 敏

## 4. 補正に対する項目名

明細書及び請求の範囲



## 5. 補正対象項目名

明細書及び請求の範囲

## 6. 表記の内容

(1) 試験の範囲と別途の追加補正します。

(2) (1) 明細書4頁14行の「一般に、」を「一般」と修正します。

(3) 明細書12頁2行の「(X頁20)」を「(X頁20)」と修正します。

## 7.添付書類の目録

請求の範囲

1通

## 請求の範囲

1. 本件の反応性液体と化粧剤の反応性液体を反応生成物の液体と電気ニネルギーに転換する電気化学的燃料電池において、導電性シート材料で作成され、前記シート材料は前記燃料と酸化剤の反応性液体に対して不透通性であるセパレーター層、及び

前記第1と第2のセパレーター層の間に挿入された膜電極アセンブリーであって、第1と第2の導電層を有し、前記導電層は多孔質導電性シート材料で作成されて付帯の液は層を有し、及び前記第1と第2の導電層の間に挿入されたイオン交換膜を含む吸収層アセンブリー。  
を含んでなり。

前記第1の導電層が、燃料液体の入口、燃料液体の出口、及び前記燃料液体の入口と前記燃料液体の出口との間の前記第1電極層の中に前記燃料液体を流すための手段を含み、

前記第2の導電層が、酸化剤液体の入口、酸化剤液体の出口、及び前記酸化剤液体の入口と前記酸化剤液体の出口との間の前記第2電極層の中に前記酸化剤液体を流すための手段を含む。

電気化字的燃料電池、

2. 前記液体を供給するための手段が、前記第1と第2の導電層の少なくとも一方の中の導管を含む請求の範囲第1項に記載のとおり構成。

3. 前記導電層の少なくとも一方が、前記少くとも一方の電極層のやの長さを他の液体の流れを分配するためのダム部材をさらに含む請求の範囲第2項に記載のとおり構成。

4. 前記電極層の少なくとも一方が、入口と出口との間の距離の少なくとも一部分にそった前記少くとも一方の電極層の中に、反応性液体が流れれる導管をさらに含む請求の範囲第2項に記載のとおり構成。

5. 前記導電層の少なくとも一方は、前記導電層の反対に向いたその表面に形成した少なくとも1つの窓を有し、前記電極層を向いた側のセパレーター層の表面は実質的に平坦であり、それによって、前記電極層の表面と前記層のセパレーター

特表平8-507402



特表平8-507402

等の方法を協同して前記範囲の中に反応性液体が流れる路を形成した請求の範囲に記載の燃料電池。

6. 自記少なくとも1本の端が、前記燃料の入口と前記燃料の出口を内側接続した請求の範囲ある体に記載の燃料電池。

7. 前記少なくとも1本の端が、前記燃料の入口から延長した第1の端と前記燃料の出口から延長した第2の端を含み、前記第2の端は前記第1の端と不連続であり、それによって、前記燃料の反応性液体は、前記第1の端周辺の隙間に通じて前記第1の端から前記第2の端に流れる請求の範囲第5項に記載の燃料電池。

8. 前記第1の端と前記第2の端は接分かれしており、前記第1の端の端が前記第2の端の端とから離れている請求の範囲第7項に記載の燃料電池。

9. 前記少なくとも1本の端から前記酸化剤の入口と前記酸化剤の出口を内側接続した請求の範囲第5項に記載の燃料電池。

10. 前記少なくとも1本の端が、前記酸化剤の入口から延長した第1の端と前記酸化剤の出口から延長した第2の端を含み、前記第2の端は前記第1の端と不連続であり、それによって、前記燃料の反応性液体は、前記第2の端周辺の隙間に通じて前記第1の端から前記第2の端に流れる請求の範囲第5項に記載の燃料電池。

11. 前記第1の端と前記第2の端は接分かれしており、前記第1の端の端が前記第2の端の端とから離れている請求の範囲第10項に記載の燃料電池。

12. 前記燃料アシストブリッジの対面側に、前記セパレーター層の少なくとも1つに接続した冷却管をさらに含み、前記冷却層は導電性シート材料で形成され、前記冷却層は、冷却用液体を前記冷却層の中に出すための手段を有し、それによつて前記冷却層アシストブリッジで発生した熱を冷却用液体に吸収する請求の範囲第1項に記載の燃料電池。

13. 前記冷却用液体が空気である請求の範囲第12項に記載の燃料電池。

14. 次記冷却層は、前記冷却層アシストブリッジに向いたその表面に形成した少なくとも1つの溝を有し、前記冷却層に通した後のセパレーター層の表面は平坦であり、それによつて、前記冷却層の表面と前記冷却層のセパレーター層の表面は並ぶ。

同して前記冷却層の中に冷却用液体の改善を図った請求の範囲第12項に記載の燃料電池。

15. 前記冷却用液体が水である請求の範囲第14項に記載の燃料電池。

16. 前記冷却用液体がエチレンゴリコールである請求の範囲第14項に記載の燃料電池。

17. 前記冷却層の少なくとも一方は、前記冷却層アセンブリーの中に冷却用液体を送るための手段を有し、それによつて、前記冷却層アセンブリーで形成した熱を前記冷却用液体に吸収する請求の範囲第1項に記載の燃料電池。

18. 前記吸収するための手段が、前記冷却用液体を運ぶための配管を含む請求の範囲第17項に記載の燃料電池。

19. 前記冷却用液体が水である請求の範囲第17項に記載の燃料電池。

20. 前記冷却用液体がエチレンゴリコールである請求の範囲第17項に記載の燃料電池。

21. 前記セパレーター層が、それから延長した熱交換面を有し、さらに前記熱交換面に冷却用液体を送るための手段を含み、それによって、前記冷却層アセンブリーで発生した熱を前記冷却用液体に吸収する請求の範囲第1項に記載の燃料電池。

22. 前記冷却用液体が空気であり、前記冷却用液体を送るための手段がファンである請求の範囲第21項に記載の燃料電池。

23. 前記冷却層が導電性樹脂ペーパーで作成された請求の範囲第1項に記載の燃料電池。

24. 前記セパレーター層がグラファイト層成で形成された請求の範囲第1項に記載の燃料電池。

25. 前記セパレーター層がグラファイトホイルで作成された請求の範囲第24項に記載の燃料電池。

26. 前記セパレーター層がニオブ層成で形成された請求の範囲第1項に記載の燃料電池。

27. 前記セパレーター層がチタン粉成で形成された請求の範囲第1項に記載の燃料電池。

28. 前記燃料料が水素であり、前記酸化剤が酸素である請求の範囲第1項に記載の燃料電池。

29. 前記燃料料が白金を含む化合物の範囲第1項に記載の燃料電池。

30. 前記燃料料が白金を含む化合物である請求の範囲第1項に記載の燃料電池。

31. 前記少なくとも1本の端の側壁がシーラントでコーニングされ、前記シーラントは前記少なくとも1本の端を流れる反応性に実質的に不通過性であり、それによつて、前記反応性の流れが前記側壁の方に導かれる請求の範囲第5項に記載の燃料電池。